

Yuki EL Soshi Kaihatu Senryaku

有機 EL 素子 開発 戦略

Development Strategy for Organic EL Element

Published on June 30, 1992

Edited by Next-Generation Display Device Study Group

Representative: Seizou Miyata

Publisher: Hirotaka Motoyama

Publishing Office: Kabushiki Kaisha Science Forum

(Pg. 87)

4. CHARACTERISTICS AND FEASIBILITY DEMONSTRATION AS A DISPLAY DEVICE ³⁸⁾

An indicator or segment display has promise as an application of an organic thin-film EL element. It uses a low-voltage drive, so it does not require a special drive circuit. Also, it is different from an LED in that clear and vivid light emission from complete surface emission can be realized in an arbitrary form or shape. The static drive makes it possible to easily obtain high-intensity brightness, and a large market as an inexpensive color film-type indicator that includes blue color can be expected.

As shown in Fig. 22, an organic thin-film EL element has high-speed response on the order of microseconds, so basically it has good performance for a multiplex drive. However, as the number of scanning lines increases, it is currently not bright enough for increased high duty. When a DC voltage is applied, the maximum brightness greatly exceeds several thousand candela, however, that is not a practical level of brightness for a linear-sequential drive with a duty of approximately 1/200. It is necessary to improve the brightness when using a pulse drive. In addition to this kind of simple matrix, an active matrix drive containing a thin-film transistor (TFT) is conceivable. Differing from a high-voltage drive type liquid crystal, two transistors and one storage capacitor are required for one picture element, however, next to a liquid crystal, an a-Si or p-Si TFT having low-voltage operation also has good compatibility, and can adequately be used with a current TFT. Compared with a liquid-crystal display, this kind of organic thin-film EL display has no problem with field angle dependency or response speed, does not require a backlight, and is expected to be excellent for a large-display-capacity display. However, this organic thin-film EL element is a current-driven element, so the increased element size and power loss due to electrode resistance cannot be ignored. Basically, compared with a current organic thin-film EL element, an improvement of brightness level of one digit or more, and improved light-emission efficiency is necessary. Also, depending on the field in which it is used as a display, a life of 5,000 hours, and if possible, 10,000 hours is necessary. From this aspect as well, the life of an organic thin-film EL element must be improved.

4.1 EXPERIMENTAL PRODUCTION OF A DOT-MATRIX DISPLAY PANEL

It was confirmed that an organic thin-film EL element displayed strong non-linear voltage-brightness (or voltage-current) characteristics. Also, the pulse response was confirmed to be several microseconds, which is excellent. A dot-matrix display using organic thin-film EL elements having these properties and driven by a time-sharing driver was produced experimentally.

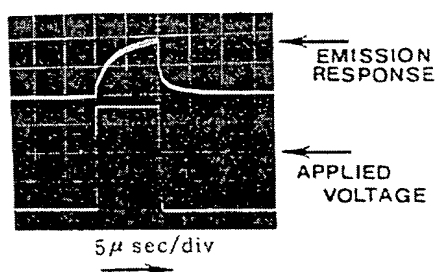


Fig. 22 Light Emission Time Response Characteristics ²⁴⁾

A patterned glass substrate with ITO having a sheet resistance of 10 Ohms was used as the substrate. The ITO electrode width was 1.75 mm, and the pitch between electrodes was 2.0 mm. Diamine and Alq3 layers were formed in order by vacuum deposition using low-resistance heating.

The thin films had a film thickness of 70 to 80 nm and 100 to 120 nm, respectively, which is thinner than a normal film thickness, and prevented the occurrence of shorts generated inside the elements due to pin holes. Since the film thickness was thin, the light-emission threshold value was 15 to 18 V, which is about 5 to 10 V higher than normal. Using a metal mask (1.5 mm width, 2.0 mm pitch), the cathodes were formed using electron-beam deposition. A magnesium-indium alloy or a magnesium-silver alloy was used as the cathode material. The drive of the experimentally produced panel was cathode common (only the selected line is grounded, and the other lines are in a floating state), and the ITO anodes were used as the data lines. The applied voltage was variable between 10 to 60 V (actually to 30 V).

(Pg. 88)

4.2 DRIVE AND DISPLAY PERFORMANCE OF A 16 X 16 DOT MATRIX

As shown in Fig. 23, basically the cathode scanning lines (metallic electrode side) are common and a positive voltage is applied to the anode data lines (ITO side) while the cathode is selected, and the panel is driven by a linear-sequential drive. Basically, this is equivalent to when an organic thin-film EL element is driven by a duty $H = t/T$ (t is the time that a positive voltage is applied on the data side, and T is the time for one cycle that the cathode line is selected). The higher the value H is, it appears that it is possible to obtain a high-intensity light-emission brightness. The scanning lines are grounded while selected, and floating when not selected. Fig. 24 shows an example of a 32 x 32 mm, 16 x 16 pixel matrix driven display^{24), 38)}. The reason that a clear display is possible with this kind of simple drive is not only because there is a small number of scanning lines, but also because, as shown in Fig. 6, the element shows strong non-linear characteristics, and when there is reverse bias, light is not emitted. The average relative dielectric constant of an organic thin film is approximately 3, so for a thickness of about 160 nm, the capacitance of the element is about 20 nF/cm². When the maximum peak voltage is taken to be 50 V (it is actually 30 V or less), the panel charge load is approximately $20 \times 10^{-9} \times 50 \times (N-1) \times M \times S$ (N is the number of scanning lines, M is the number of data lines and S is the dot area). Moreover, when the maximum conductive current density is taken to be 200 mA/cm², a load $200 \times 10^{-3} \times M' \times t' = 200 \times 10^{-3} \times M'/(f \times N)$ (M' is the number of data lines that are ON, f is frame frequency) flows while the scanning lines are selected. In the trial product, both M and N were 16, which is small, and the charge load was small compared to the conductive load. Therefore, depending on the drive method, it appears that change in the light-emission characteristics is not a big problem. However, how much the display characteristics are affected by a relative high element capacitance, and what should an efficient drive circuit for this kind of circuit be like, are topics that must be investigated in the future.

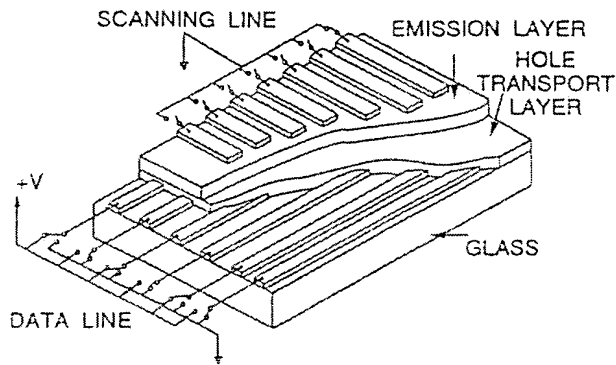


Figure 23. Basic Construction of a 16 x 16 Dot Display Device ²⁴⁾

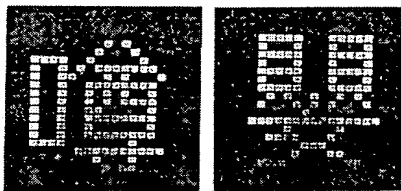


Figure 24. 16 x 16 Dot Display Example ²⁴⁾

Degradation of the light-emission characteristics was not notable when driven at a low average brightness (10 to 20 cd/m^2). The maximum brightness of emitted light is limited by the maximum drive current of the driver, resistance that is in series with the element (bulk resistance of the organic thin film) and the light-emission efficiency.

(Pg. 89)

For practical application there are many problems as described above the must be solved. However, as shown in Fig. 34, it was possible to obtain a clear and vivid display with a simple linear sequential drive circuit, and basic performance as a simple matrix display was demonstrated. With a duty of 3.5%, the brightness was 20 to 30 cd/m^2 . By adding colored elements, it was possible to create blue green and orange colored light-emitting elements without a drop in brightness.

CONCLUSION

As can be seen from the light-emission performance of an organic thin-film EL element, the possibility of a very thin display device is well supported. As a self light-emitting display element with a fast response speed, it can be said to be a powerful display element that is suitable for a dynamic display as well as has excellent non-linear voltage - brightness characteristics that can be used for a large-area display. In addition, it has been made to be highly efficient by doping with colored materials, as well as it is made to be thin enough for practical applications, and has plenty of potential to become low cost. However, the biggest problem is short light-emission life due to element degradation. The problem of degradation of the compositional materials of the element due to oxygen, moisture, heat or the like will probably be solved by performing countermeasures against those contributing factors. However, causes of degradation related to the internal charge of the element, for example the charge injection process or light-emission process, have many parts that cannot be solve without detailed investigation of the light-emission or degradation mechanism. Therefore, when performing research and development of organic thin-film EL elements, performing basic research of the charge-injection mechanism and light-emission mechanism at the same time as development of the element is very important. From this aspect, this paper did not contain contents capable of proposing a clear solution, however, it did present several suggestions. In order to clarify the mechanisms, gaining a good understanding of models used for guidance is essential, and the authors will be very happy if the model they proposed, which takes these points into consideration, will be of help in future research and development.

The results of the authors' experimental production give sufficient evidence of the feasibility of practical use as a display device, and this paper will meet its objective if it is in some way able to contribute to future development. Only one example of a drive method was described in this paper, however, there are surely other drive methods that could prove to be even more efficient. The authors will be happy if this paper casts a stone in the direction of that area of development.



有機EL素子開発戦略

書籍コードNo0167

1992年6月30日 第1版第1刷発行

編 集 次世代表示デバイス研究会

代 表 宮田 清 蔵

発 行 者 元 山 裕 孝

発 行 所 株式会社 **サイエンスフォーラム**
〒113 東京都文京区本郷2-27-16
Tel.東京(03)5689-5611

価格 52,000円

© 1992 Printed in Japan

禁複製

落丁・乱丁本はお取替いたします。

発刊 / 安彦勝博 制作協力 / 編集工房DAL 印刷所 / アイコー企画印刷所 製本所 / 東和製本所

P267

している限り観測できなかった。

4. ディスプレイデバイスとしての特徴と可能性実証³⁸⁾

有機薄膜 EL 素子の応用としてインジケータやセグメント表示のディスプレイが有望であろう。低電圧駆動のため特別な駆動回路は不要となる。また、LED と異なり、完全な面発光の鮮明な発光が任意の形状で実現できる。スタティック駆動であるため容易に高い輝度が得られ、青色も含んだカラーの安価なフィルム状インジケータとして大きな市場が期待できる。

有機薄膜 EL 素子は、図-22 に示すように、マイクロ秒オーダーの高速応答性を有しているため基本的にマルチプレックス駆動に対する能力は高い。しかし、走査線数の増加に伴う高デューティ化に対して、現状では輝度不足である。DC 電圧印加時は最大輝度は数千カンデラをはるかに越えるが、1/200 程度のデューティでの線順次駆動では実用レベルの明るさでない。パルス駆動時の輝度改善が必要である。このような、単純マトリックスの他に、薄膜トランジスタ (TFT) を組み込んだアクティブマトリックス駆動が考えられる。電圧駆動型の液晶とは異なり、一画素に 2 個のトランジスタと 1 個の蓄積容量が必要となるが、低電圧駆動であり a-Si や p-Si の TFT とは液晶に次いで相性がよく、現状の TFT で十分対応可能である。このような有機薄膜 EL ディスプレイは液晶ディスプレイに比較して、視野角依存性や応答速度の問題もなく、バックライトも不要であり、エクセレントな大表示容量ディスプレイが期待される。しかし、この有機薄膜 EL 素子は電流駆動型の素子であるため素子大型化と共に電極抵抗による電力損失等も無視できなくなる。基本的には現状の有機薄膜 EL 素子に比べ、1桁以上の輝度レベルと発光効率の改善が必要である。また、ディスプレイとしては使用分野にもよるが、5000 時間、できれば 1 万時間以上の寿命が必要である。この点でも有機薄膜 EL 素子は寿命の改善が必要である。

4.1 ドットマトリックス表示パネルの試作

有機薄膜 EL 素子は非線形性の強い電圧-輝度（あるいは電圧-電流）特性を示すことが確認された。また、パルス応答は数マイクロ秒と優れていることも確認された。このような性質をもつ有機薄膜 EL 素子を利用して時分割駆動によるドットマトリックスディスプレイを試作した。

シート抵抗 10 オームの ITO 付ガラス基板をパターンニングしたものを基板として使用した。ITO 電極幅は 1.75 mm で、電極間ピッチ 2.0 mm である。ジアミン、Alq₃ 層を順次抵抗加熱による真空蒸着で形成した。各々の膜厚は 70~80 nm、100~120 nm と、通常の膜厚より厚めにし、素子内に発生するピンホールによるショート発生を防止した。膜厚が厚くなったため、発光閾値は 15~18 V と通常より 5~10 V 程度高くなっている。メタルマスク（幅 1.5 mm、2.0 mm ピッチ）

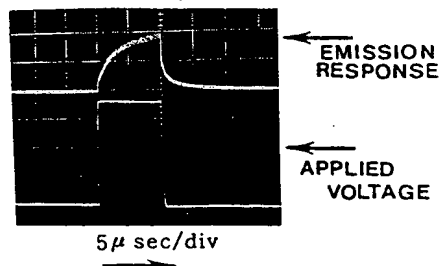


図-22 発光の時間応答特性²⁴⁾

を使用して、電子ビーム蒸着で陰極を形成した。陰極材料はマグネシウム・インジウム合金あるいはマグネシウム・銀合金を使用した。試作したパネルの駆動はカソード共通（選択ラインだけ接地して、その他はフロート状態）で、ITO 陽極をデータラインとしている。印加電圧は 10 から 60 V（実際は 30 V まで）まで可変である。

4.2 16×16 ドットマトリックスの駆動と表示性能

図-23 に示すように、基本的にはカソード・スキャンライン（金属電極側）を共通とし、アノードデータライン（ITO 側）に正電圧をカソード選択期間内で一斉に印加する、線順次駆動でパネルを駆動する。基本的には、有機薄膜 EL 素子をデューティ $H = \tau/T$ （ τ はデータ側の正電圧印加期間、 T はカソードライン選択の 1 周期期間）で駆動している場合と等価である。 H が高い値ほど見かけ上高い発光輝度を得ることができる。スキャンライン選択時はアースに、非選択時はフロートになる。データラインは、選択ラインが正電圧、非選択ラインがアースになるようになっている。図-24 は表示面積 $32 \times 32 \text{ mm}$ 、 16×16 画素のマトリックス駆動のディスプレイの表示例を示す^{24), 38)}。このような簡単な駆動でもきれいな表示ができるのはスキャンライン数が少ないばかりでなく、図-6 に示すように素子が強い非線形性を示すと共に逆バイアス時には発光しないためである。有機薄膜の平均比誘電率はおおよそ 3 であるので、160 nm 程度の膜厚では素子の容量は 20 nF/cm^2 程度である。最大ピーク電圧を 50 V とすると（実際は 30 V 以下であるが）パネル充電電荷量はおおよそ $20 \times 10^{-9} \times 50 \times (N-1) \times M \times S$ （ N はスキャンライン数、 M はデータライン数、 S はドットの面積）である。また最大ピーク伝導電流密度を 200 mA/cm^2 とすれば、 $200 \times 10^{-3} \times M' \times \tau = 200 \times 10^{-3} \times M' / (f \times N)$ （ M' はオンになっているデータライン数、 f はフレーム周波数）の電荷がスキャンライン選択期間に流れている。試作品は M 、 N 共に 16 と小さいため、伝導電荷に比べ充電電荷はかなり小さい。そのためか駆動法による見かけ上の発光特性変化はあまり問題になっていないようである。しかし、このように比較的高い素子容量によってどの程度表示特性に影響があるか、またこのような表示パネルの効率の良い駆動回路はどうあるべきか、今後検討しなければならない課題であろう。

発光特性の劣化は、平均輝度が低いところ（ $10 \sim 20 \text{ cd/m}^2$ ）で駆動している場合は顕著ではない。発

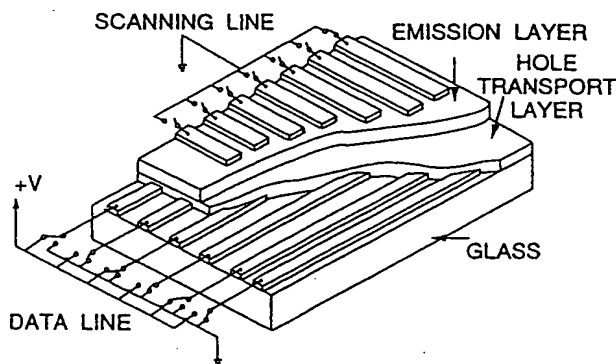


図-23 16×16ドットディスプレイデバイスの基本構造²⁴⁾

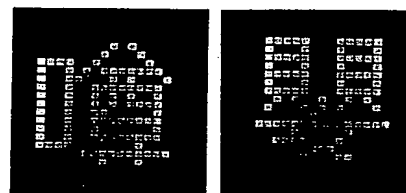


図-24 16×16ドットディスプレイの表示例²⁴⁾

光の最大輝度はドライバーの最大駆動電流、素子の直列にはいる抵抗（有機薄膜のバルク抵抗）および発光効率で制限されている。

実用化には上で述べたような解決すべき問題点が多い。しかし、図-24に示すように、簡単な線順次駆動回路で鮮明な表示が得られ、簡単なマトリックスディスプレイとしての基本的な能力を実証した。デューティ 3.5 % で 20~30 cd/m² の輝度であった。色素添加によって輝度低下をとまわず青緑や橙色発光の素子作成もできる。

むすび

有機薄膜 EL 素子の発光性能から極めて薄型のディスプレイデバイスの可能性を充分担持していることが理解されたと思う。自発光表示素子で、かつ応答速度も早く、ダイナミックな表示にも適した電圧-輝度の非線形性にも優れて大面積化可能な表示素子の有力な一つといえる。加えて、色素材料のドーピングによる高効率化や実用上必要とされる薄膜化、低コストの可能性も充分潜在化している。しかし、この最大の課題は、素子劣化による発光寿命の短期化にある。酸素、水分、発熱などによる素子構成材料の劣化は、その要因を断つ対応策を施せば解決されるだろう。しかし、素子内部の電荷に関連する、例えば電荷注入過程や、発光過程での劣化要因は、発光や劣化のメカニズムなどを詳細に検討しなければ解決できない部分が多い。このため、有機薄膜 EL 素子の研究開発は、素子開発と同時に電荷注入機構や発光機構などに立ち入った基礎研究が極めて重要である。この点で本章では明確な解答を提案できる内容ではなかったけれども多くの示唆を与えることができたものと考え。機構解明には、その指針となるモデルの把握が重要で、筆者らが当面思考しているモデルの提案が、今後の研究開発に役立てば大変幸甚である。

ディスプレイデバイスとしての実用の可能性については、筆者らの試作結果から、充分実証できたと思うが、これが今後の研究発展に何らかの寄与となれば本章の目的が満たされたと思う。本章による駆動方法は、一例にしか過ぎず、さらに効率のよい駆動方法があるにちがいないと信じる。本章が、その方面の研究に一石が投じられれば幸いである。

〔溝口勝大／宇津木功二〕

文 献

- 1) K.C.Kao, W.Hwang: Electrical Transport in Solids, In: International Series in the Science of the Solid State (Pamplin, B.R., ed.), PERGAMON PRESS(1981)
- 2) W.Helfrich, W.G.Schneider: Transients of Volume-Controlled Current and of Recombination Radiation in Anthracene, J.Chem.Phys., Vol.44, p.2902(1966)
- 3) P.S.Vincentt, W.A.Barlow, R.A.Hann, G.G.Roberts: Electrical Conduction and Low Voltage Blue Electroluminescence in Vacuum-Deposited Organic Film, Thin Solid Films, Vol.94, p.171 (1982)

- 4) J.Batey, G.G.Roberts, M.C.Petty : Electroluminescence in GaP/Langmuir-Blodgett Film Metal/Insulator/Semiconductor Diodes, Thin Solid Films, Vol.99, pp.283-290(1983)
- 5) S.Hayashi, T.T.Wang, S.Matsuoka, S.Saito : Electroluminescence in Amorphous Pyrazoline Films Under DC Fields, Mol.Cryst.Liq.Cryst.Let., Vol.135, p.355(1986)
- 6) M.Era, S.Hayashi, T.Tsutsui, S.Saito : Electroluminescence of a J-Aggregated Cyanine Dye Multilayer, J.Chem.Soc., Chem.Comm., p.577(1985)
- 7) 国府田, 柊元 : 光物性測定技術, 東京大学出版会(1982)
- 8) C.W.Tang, S.A.VanSlyke : Organic Electroluminescent diodes, Appl.Phys.Lett., Vol.51, p.913(1987)
- 9) 石子, 谷垣, 布村 : 有機薄膜 EL 素子の発光特性, 第 49 回秋期応用物理学会講演会予稿集, 7a-ZG-1/ I (1988)
- 10) 石子, 布村, 高野, 谷垣, 谷 : 有機薄膜 EL 素子の発光特性, 電子情報通信学会技術研究報告, EID88, p.35(1988)
- 11) C.Adachi, S.Tokito, T.Tsutsui, S.Saito : Electroluminescence in Organic Films with Three-Layer Structure, Jpn.J.Appl.Phys., Vol.27, p.L269(1988)
- 12) 安達, 江良, 林, 筒井, 斎藤 : 色素薄膜の電界発光, 電子情報通信学会技術研究報告, EID88, p.31 (1988)
- 13) C.Adachi, T.Tsutsui, S.Saito : Organic electroluminescent device having a hole Conductor as an emitting, Appl.Phys.Lett., Vol.15, p.1489(1989)
- 14) C.Adachi, S.Tokito, T.Tsutsui, S.Saito : Organic Electroluminescent Device with a Three Layer Structure, Jpn.J.Appl.Phys., Vol. 27, p.L713(1988)
- 15) 安達, 筒井, 斎藤 : 色素薄膜の注入型電場発光, 日本学術振興会光電相互変換第 125 委員会第 129 回研究会資料, p.1(1989)
- 16) C.W.Tang, S.A.VanSlyke, C.H.Chen : Electroluminescence of doped organic thin film, J.Appl.Phys., Vol.65(9), p.3610(1989)
- 17) 宇津木, 石子, 布村, 高野 : 有機色素を用いた薄膜型エレクトロルミネッセンス素子, 電子情報通信学会技術研究報告, EID89, p.37(1989)
- 18) K.Utsugi, E.Nagahata, S.Takano : Luminescent Properties of Doped Organic EL Diodes using Naphtalimide Derivative, Electrochem.Soc.180th Meeting, Phoenix, Extended Abstract. #648(1991)
- 19) 細川, 東海林, 東, 楠元 : 有機 EL 素子の発光層の研究, 電子情報通信学会技術研究報告, EID89, p.41 (1989)
- 20) 江草, 源間, 三浦, 東 : 有機 EL 素子の動作機構, 電子情報通信学会技術研究報告, EID90-79, p.25 (1990)
- 21) 東海林, 細川, 東, 楠本 : 有機 EL 素子発光層の研究, 光電相互変換 125 委員会 EL 分科会第 4 回研究会

資料, p.13(1990)

- 22) C.Adachi, T.Tsutsui, S.Saito : Organic Thin-Film Electroluminescent Device, Proceeding of The 9th International Display Research Conference, 19-4(1989)
- 23) 石子, 宇津木, 布村, 高野 : 有機薄膜 EL 素子の金属電極依存性, 第 50 回応用物理学会学術講演会予稿集, 29P-ZP-14, p.1009(1989)
- 24) M.Ishiko, K.Utsugi, K.Nunomura, S.Takano, C.Tani : Matrix-Addressed Organic Thin Film EL Display Panel, Proceeding of The 9th International Display Research Conference, 19-3(1989)
- 25) 遠藤, 森, 林, 堂園 : スチリル誘導体を用いた混合一層型有機 EL 素子, 第 52 回応用物理学会学術講演会予稿集, p.1094(1991)
- 26) 網中, 安達, 筒井, 斎藤 : 単層型有機薄膜 EL 素子の発光特性, 第 52 回応用物理学会学術講演会予稿集, 10P-S-4, p.1092(1991)
- 27) 高橋, 飯島 : 真空蒸着法と膜物性, 電気・情報関係連合講演論文集, 2-163(1989)
- 28) 雀部博之 : 高分子超薄膜の作成と電気物性, 応用物理, Vol.56, No.2, pp.146-159(1987)
- 29) 矢部, 谷口, 増原, 松田 : 有機超薄膜入門, 培風館(1989)
- 30) 吉見, 森, 水谷 : 有機発光素子の発光特性に及ぼす ITO 基板の影響 (II), 第 52 回応用物理学会学術講演会予稿集, 10P-S-9, p.1094(1991)
- 31) 富川, 伊藤, 小林, 渡 : 有機 EL 素子の発光特性に及ぼす陰極材料の効果, 第 40 回高分子討論会予稿集, Vol.40, No.10, pp.3582-3584(1991)
- 32) 石子, 宇津木, 布村, 高野, 谷垣 : 有機薄膜素子とその発光特性, 第 226 回蛍光体同学会講演予稿集, pp.29-35(1989)
- 33) 安達, 森川, 筒井, 斎藤 : ホール輸送物質・発光性物質混合単一層による有機 EL 素子, 第 36 回応用物理学会関係連合講演会予稿集, 3a-G-7, p.209(1989)
- 34) 森川, 安達, 筒井, 斎藤 : 有機電界発光素子の EL 効率の支配因子, 第 50 回応用物理学会学術講演会予稿集, 29p-ZP-8(1989)
- 35) J.Dresner : Double Injection Electroluminescence in Anthracene, RCA Rev., Vol.30, pp.322-334(1969)
- 36) T.Mizutani, Y.Takai, T.Osawa, M.Ieda : Barrier heights and surface states of metal-polymer (PET) contacts, J.Phys.D : Appl.Phys., Vol.9, p.2253(1976)
- 37) 森, 杉村, 水谷 : 有機電界発光素子の発光及び劣化機構, 電子情報通信学会技術研究報告, OME89, p.13(1989)
- 38) 布村, 石子, 高野, 谷 : 有機薄膜 EL 素子, 平成元年電気・情報関連学会連合大会講演論文集, 2-123(1989)
- 39) 太田, 左近, 高橋, 大沼 : ビススチリルアントラセン誘導体 EL 発光材料の置換基効果, 第 40 回高分子討論会予稿集, Vol.40, No.10, pp.3606-3608(1991)
- 40) 筒井, 安達, 斎藤 : 光電相互変換機能をもつ有機薄膜の最近の発展, 応用物理, Vol.59, No.12,